



TITLE:

接着層の顕微鏡的観察

AUTHOR(S):

林, 昭三; 貴島, 恒夫

CITATION:

林, 昭三 ...[et al]. 接着層の顕微鏡的観察. 木材研究 : 京都大學木材研究所報告 1963, 31: 87-103

ISSUE DATE:

1963-11

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/52920>

RIGHT:

接着層の顕微鏡的観察

林 昭三*・貴島恒夫*

Shōzō HAYASHI* and Tsuneo KISHIMA* : Microscopic Observation of the Glue lines.

集成材においてはとくに強度と耐久性とが重視されるが、技術的に最も問題になるのはそれらを支配する構成部材の接着である。そしてこの接着状態は被着材表面の状態いかんによつて左右される。

材面がいかに平滑に切られたとしても、元来多孔質の木材のこととて、顕微鏡的なスケールではその切削面は決して平滑ではあり得ない。たとえば早材と晩材とであるいは繊維に平行か直角かによつてその断面の状態は当然異なるし、樹種が違えばその差異も大きい。また切削条件たとえば刃の鋭利さ、切削速度、あるいは被削材の含水率などによつても異なってくる。比較的薄くて軟らかい細胞膜のために切削圧力の影響を受け易い早材に切削後却つて変形回復を見ることがある。微細構造的には細胞の一次膜、二次膜、細胞間層の各膜層によつて接着性能も一様でないはずである。

このような被着材面の性質が、接着剤との親和性あるいはその浸透性に差異を来たし、接着性に影響を及ぼすことは言うまでもないし、被着材中への接着剤の浸透に対し、接着剤の塗布量、水分、流動性、および圧縮力などは有利に、接着剤の粘度および比重、堆積時間は不利に関係する因子であるといえよう。

これら木材接着に関する諸因子のうち被着材面の状態に主眼をおいて、その顕微鏡的観察結果から接着性を解釈し、接着層の接着状態や破壊状態について詳細に鏡査を行なつた。

I 内部接着層の接着状態

集成材内部の接着層には、構成部材相互間にあつて、部材の繊維方向に平行なものと、各部材の端面におけるスカーフ・ジョイントに属し繊維方向に平行でないものがあるが、この差異は要するに接着層と被着材たる構成部材の繊維方向とのなす角度いかんにより帰し得るものと考えられる。そこで素材の繊維方向に対していろいろの角度に交わる接着層を作り、圧縮力や塗布量などを一定にした条件下で接着を行なつてその接着状態の差異を顕微鏡的に観察した。

実験材料と実験方法

供試材樹種はスギ、ヒノキ、クロマツで、辺材から1辺3cmの二方柱立方体試片をとり、さらにこの試片を繊維方向となす角、横断面では年輪となす角が0°, 30°, 60°, 90°になるようにマイターソーで鋸断し、その鋸断面がそのまま接着層になるように、再び元の通りに接着した(Fig. 1)。このように鋸断すると、Type 1, 2, 4, 5, 6, 9では、挽幅による僅かの違いはあつても、早材と早材、晩材と晩材とがほぼ元通りに合致するが、他の試片では挽幅と年輪幅との関係から合致しないことがある。しかし MARIAN 等¹⁾によればこれらの間の接着力に

*木材生物研究部門, Div. of Wood Biology, Wood Res. Inst., Kyōto Univ.

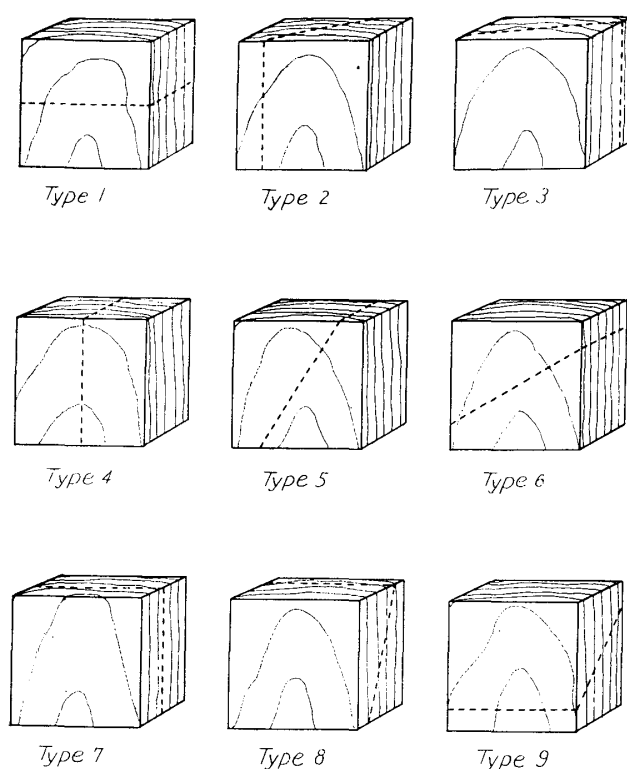


Fig. 1. Sawn and glued lines of the test pieces.

は差異を認めていないので、この実験でも早・晩材の関係は一応無視した。なお接着時の試片の含水率その他の諸性質は Table 1 に示した。接着剤は尿素樹脂（キゲタライム UA-104 の原液に硬化剤の10%水溶液を 10% 添加）を用い、試片一半の鋸断面中央に注射器で 0.08cc（全面積に均一塗布したとすれば約 100g/m² にあたる）滴下し、他の一半を貼り合わせた。圧縮時間 24 hr、圧縮力 1 kg/cm² で常温で接着し、除圧後さらに 48 hr 経過してから次の測定観察を行なった。

1. 沸騰水中における剝離時間

接着力の一応の目安として、沸騰水中に試片を投入し、剝離するまでの時間を測定した。

2. 接着剤の被着材面での拡がり

剝離した接着面に 2 mm の格子スケールをあて、その交点による算点法で試片の鋸断面（貼り合わせた面）全

Table 1. Properties of the test specimens.

Species	SUGI <i>Cryptomeria japonica</i> D.DON	HINOKI <i>Chamaecyparis obtusa</i> ENDL.	KUROMATSU <i>Pinus thunbergii</i> PARL.
Properties			
Moisture content (%)	14.8	14.0	15.4
Specific gravity in air dry	0.38	0.43	0.50
Annual ring width (mm)	2.7	2.8	1.7
Proportion of late wood (%)	10.8	6.9	23.3
Diameter of early wood tracheid (μ)			
radial	43	28	40
tangential	28	21	29

面積に対する接着剤拡張面積の比率を求めた。

3. 接着剤浸透の深さ

試片の接着剤滴下点を中心にそれを小さく割り、接着面と直角のマイクローム切片を取り、70倍の顕微鏡下でマイクロメートルによつて接着剤の浸透した深さを測定した。

実験結果と考察

Fig. 1 において、Type 2, 3, 4, 7 の試片は、横断面（木口面）での接着面が年輪となす

角度は違っているが、繊維方向に対してはいずれも 0° である。これらの試片相互間についての上記測定結果には各樹種ともに有意差は認められなかつた。同様なことは接着層が板目面からみて繊維方向に 30° の試片 (Type 5) と柾目面からみて 30° の試片 (Type 8) においても、また 60° の場合 (Type 6, 9) にもみられたので、繊維方向と接着層とのなす角度が等しい試片からの結果はこれを平均して Fig. 2 に示した。堀岡²⁾ の行なつた実験すなわちスギにおいて年輪となす角度をいろいろ組合わせた試験の結果でもその接着力に殆ど差がないことが認められている。

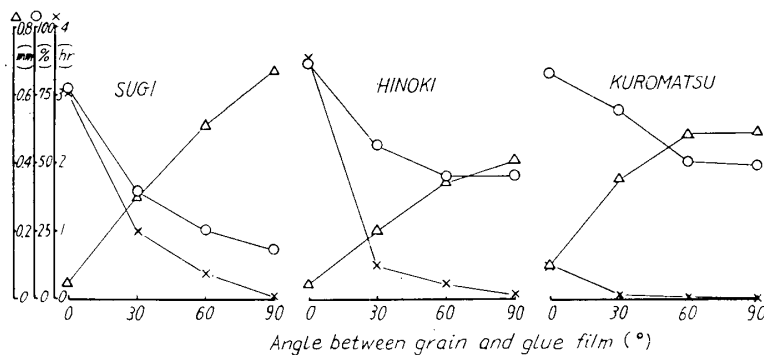


Fig. 2. Times for delamination of glue films by boiling water (\times), proportions of glue spreading areas (\circ), and penetrating depths of glue into wood (\triangle), in relation to the angles between grain and glue film.

実験に供した3樹種はいずれも針葉樹で、組織学的にみてもクロマツに樹脂道がある外は大きな差異はなく、測定結果も同じ傾向を示すので、概括して結果を述べると以下の如くである。

1. 剥離時間

接着力測定には剪断試験による方が適當と思われるが、木部破断が起れば以後の測定に不都合を生じるので、沸騰水中における剥離時間をもつてそれに代えることにした。ただし次項で述べるように全面接着でない点で、真の剥離強度とは言えないけれども一応の基準と見なし得よう。

繊維方向と接着層とのなす角度が 0° の場合 (Type 2, 3, 4, 7), 接着面はその 90° の場合 (Type 1) に較べて明らかに平滑であり、また後に述べるように接着剤の拡がり、すなわち有効な接着面積も大きいため、剥離に要する時間が長いのは当然である。木口面接着 (90° , Type 1) の試片には、沸騰水中に投入した直後に小さい破裂音とともに剥離するものが多い。これは高温吸水による膨張の差に起因するものと考えられる。クロマツがスギ、ヒノキに比して極めて短時間で剥離したのは、接着面に松脂の滲出があつて接着不良になつたり、また木理が不斉であつたために、沸騰水中で局部的な膨張の差が大きく生じたためと考えられる。

2. 接着剤の拡がり

煮沸剥離した被着材面における接着剤の拡がりの度合も Fig. 2 に示した。接着剤を接着面中央部に滴下し、対の試片を貼り合わせて圧縮すれば、接着剤は鋸断面すなわち接着面に沿うて拡がる。繊維方向と接着層とのなす角度が 0° の場合は接着面は平滑であり、かつ鋸断が正確に繊維方向に行なわれていると接着面には仮道管は殆ど開口していない。また接着剤が細胞膜を横切つて仮道管に浸透することはない。これは水溶性染料の浸透例から推して明らかである³⁾。

接着面が微視的に粗になれば接着剤の拡がりに対する抵抗が大となり、また接着面に開口する仮道管の数が増加すれば接着剤の細胞内腔に浸透する量が増える。繊維方向と接着層とのなす角度が大きくなるに従つて、接着面は粗になり、仮道管の開口数も増加する。これらが相乗的に作用して、接着面における接着剤の拡がりや角度の増加とともに減少し、その間には有意差が認められた。3樹種間には有意差は認められなかつたが、スギにおいて繊維方向と接着層とのなす角度が増加するとともに接着剤の拡がりや著しく減少しているのは、Table 1 から判るように試片の早材仮道管内径が大きく、しかも早材部分が多いという解剖的な性質によるものと思われる。

以上の結果からスカーフ・ジョイントあるいは木口面接着において欠膠を生ぜしめないためには、単なる柾目面あるいは板目面接着に比し2～3倍の塗布量を要することが判る。

3. 接着剤浸透の深さ

木材内部に接着剤が浸透する際、細胞膜を横断しての浸潤を無視すれば、細胞内腔への浸透のみを考えればよい。この場合浸透が毛細管引力によるものとすれば明らかに直径の小さい晩材に大きな浸透をみるはずである。しかし実際に浸透した個所の切片を作つて観察した結果では、内腔の大きい早材にのみ接着剤が浸透し、晩材には全く浸透がみられなかつた。従つて接着剤浸透深さの測定は早材仮道管について行い、その結果も Fig. 2 に示した。繊維方向と接着層とのなす角度が 0° の場合、接着剤は全く並列的浸透すなわち横浸透を起さないが、実際には接着面に僅かに存する細胞の開口部分からの直列的浸透すなわち縦浸透によるものがある。角度が大きくなるに従つて浸透の深さは大きくなり、その関係が各樹種ともほぼ正弦曲線をなしているのは、早材仮道管自体に対する縦浸透の長さが同じ関係にあることを示している。なお検定の結果、各樹種間に有意差はないが、角度には1%の危険率で有意差が認められた。

Ⅱ 内部接着層の微視的欠膠

接着操作上とくに注意を要することは接着層における欠膠である。とくに細胞内腔に接着剤の不連続な個所が生じたり、同じく一見細胞内腔に浸入しているものでも接着面側に逆のメニスカスをもつた微視的な欠膠を生じていることのある事実である。これには製糊の際に生じた小さい気泡、有縁膜孔の膜孔縁の突出による影響、その他塗布量の不足、接着剤の硬化の際の容積収縮など、種々の因子が考えられるが、外部からは全く見えないものだけに、接着力ひいては接着した材の強度に対する悪影響が懸念される。そこで、顕微鏡的な被着面の構造と、塗布量あるいは圧縮力の差異とによつて内部接着層に起る微視的欠膠を確かめるため次の実験を行ない、剪断試験によつて接着力を求め、接着層の微視的な欠膠について顕微鏡観察を行なつた。

実験材料と実験方法

供試材はスギ(新宮産)およびアカマツ(A:西条産, B:広島産)で、挽き道がそれぞれ木口, 柾目, 板目となるような試片を辺材からとり、その挽き道を接着層とした。接着時の試片の含水率その他の諸性質は Table 2 に示した。接着剤は尿素樹脂の原液に硬化剤を10%添加したものをを用いた。塗布量は柾目・板目面には 300 g/m^2 、木口面には 1500 g/m^2 未満の範囲、圧縮力は 5 kg/cm^2 および 0 kg/cm^2 (不圧縮)の2条件とし、24 hr 圧縮した後 JIS Z 2114

Table 2. Properties of the test specimens.

Properties	Species	SUGI <i>Cryptomeria japonica</i> D.DON	AKAMATSU <i>Pinus densiflora</i> SIEB. et ZUCC.	
			A	B
Moisture content (%)		13.0	11.4	11.5
Specific gravity (R)*		0.43	0.55	0.63
Annual ring width (mm)		1.25	0.83	1.95
Proportion of late wood (%)		9.8	22.7	23.0

* R=oven dry weight/green wood volume

に準拠して剪断試験を行なった。剪断試片を取った残りの試料および剪断試験後の試片から切片を取り、グリセリンで封入したプレパラートによつて、接着層を観察した。

実験結果と考察

1. 木口面の接着

スギにしてもアカマツにしても接着時に圧縮しなければ接着力は全くないかあるいは殆どないが、圧縮すればこの実験の塗布量の範囲ではその増加とともに接着力が増大する。Fig. 3は

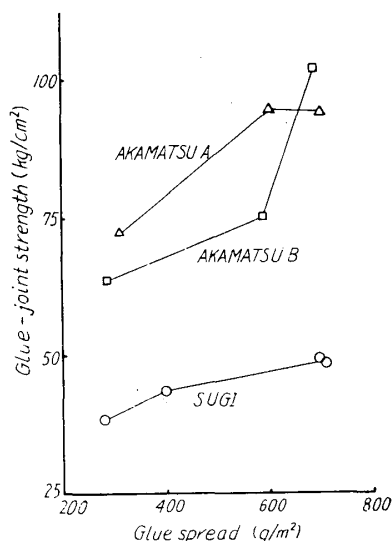


Fig. 3. Relation between glue spread and glue-joint strength by using test pieces glued under pressure 5kg/cm² in the case of transversally glued test.

圧縮した場合の塗布量と接着力との関係を示したものである。

塗布量の少ないときは接着剤の大部分が早材細胞中に收容されて接着層を形成せず、また晩材もいわゆる乾燥接合の状態を呈し、接着の役目を果していない。このような現象はとくに不圧縮の場合に著しいが、これはすなわち接着層内部における微視的欠膠と見なし得る。圧縮すれば塗布量は少なくとも接着力が発揮されるようになるのは接着層の微視的な欠膠が圧縮によつて避けられる結果であると考えられる。塗布量を増加して圧縮すれば接着力も増加するが、これは早材仮道管に多量に接着剤が浸透してもなお被着面に接着剤が残つて接着層を形成し、また浸透した接着剤による機械的接着力も寄与しているものと考えられる。要するに木口面接着で充分な接着力を得るには、柾目あるいは板目面接着の2倍ないしそれ以上の塗布量を必要とすることがここでも明らかである。充分な圧縮を行なつて微視的な欠膠のない連続した接着層を作ることが肝要である。

2. 柾目・板目面の接着

この実験での塗布量の範囲 (50~300 g/m²) では塗布量の増加に従つて、また圧縮を行なうことによつて、柾目・板目面接着ともにその接着力が増大する。Fig. 4 は柾目面接着についてのこの関係を示したものである。すなわち塗布量 300 g/m² 以下では塗布量と接着力とに

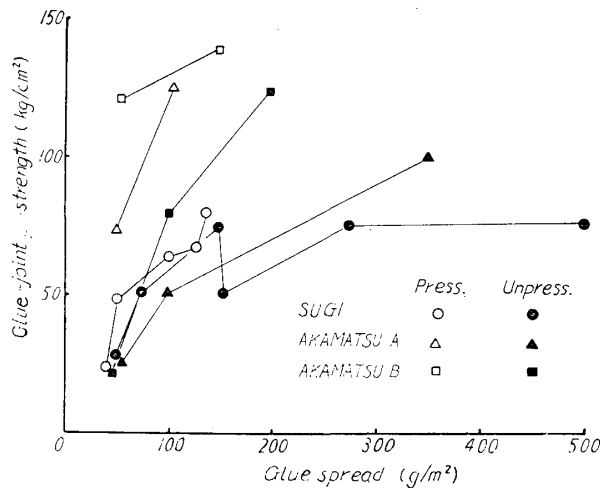


Fig. 4. Relation between glue spread and glue-joint strength in the case of radially glued test.

されるが、微視的に解釈すれば、圧縮によつて余剰の接着剤は接着層外に溢出するし、不圧縮のときにも気泡や欠膠が生じないのみならず、この程度の塗布量では接着層の厚さの増大による接着力低下も起らない⁴⁾ ことによると考えられる。とすれば汎用塗布量 300~400 g/m² は接着状態からも一応うなずける範囲であるといえる。

Ⅲ 接着剤の浸透状態

針葉樹材を構成している要素すなわち細胞または組織は仮道管、木部柔組織、放射組織および樹脂道である。仮道管と放射組織とはすべての樹種にあり、スギ、ヒノキにはこのほかに木部柔組織、アカマツ、クロマツにはさらに樹脂道が存在する。しかしこれらの針葉樹では仮道管が約 97% を占め、放射組織が約 2%、残りが柔組織あるいは樹脂道ということになる。従つて、今迄の実験によつて得たプレパラートから接着剤の浸透状態を顕微鏡的に観察した結果は、いきおい主として仮道管についての浸透状態を示すことになる。

木口接着あるいはスカーフ・ジョイント接着においては内腔の大きい早材仮道管にのみ接着剤が浸透し、晩材には全くそれがみられなかつた (Photo 1, 2, 3, 4)。これは試片鋸断の際に晩材細胞膜端が折損して鋸断面すなわち接着面における仮道管の開口を塞いだためである。従つて接着面における開口が塞がれると、たとえ早材仮道管でも、そこには接着剤の浸透はみられない。一方内径の小さい放射組織細胞でもそれが接着面に開口していると接着剤は浸透する。塗布量が少なく圧縮が充分に行なわれないときには接着剤は細胞内腔に收容されて接着層を形成せず、また晩材では微視的欠膠の状態 (Photo 2) を呈し、接着の役目を果していない。

柾目あるいは板目面など、繊維方向に平行な面での接着において、接着剤が横浸透を起さないことは上に述べた。しかし実際には接着面に僅かに存在する細胞の開口部分からの縦浸透によるものがある (Photo 5, 6)。塗布量が少なく圧縮しない場合には接着層に気泡を多く含む (Photo 7)。塗布量が多ければ圧縮しなくてもかなりの接着力を示すのはこのような微視

は比例的な関係がある。しかしそれ以上塗布量を増しても接着力の向上にはあまり役立たない。

柾目あるいは板目面にも必ず被接着面に開口している細胞があつて、その内腔に接着剤が浸透する。塗布量とくに少ないときにはそのために接着層に微視的な欠膠ができるし、圧縮しない場合には接着層に気泡を含むことも多くなつて接着力が低下する。塗布量が多ければ、圧縮した場合はもちろん、圧縮しなくても、かなりの接着力を示すのは、このような微視的な欠陥が少なくなるためである。塗布量 300 g/m² 以上では接着力がほぼ一定になる傾向が Fig. 4 から予想

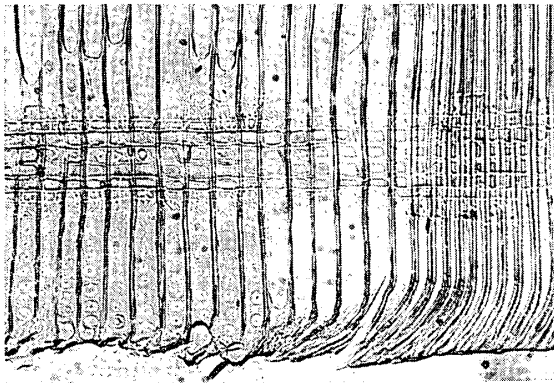


Photo 1. Upper side of a glue line. Glue penetrates into early wood tracheids but is obstructed in the right half. KUROMATSU, (*r*), $\times 85$

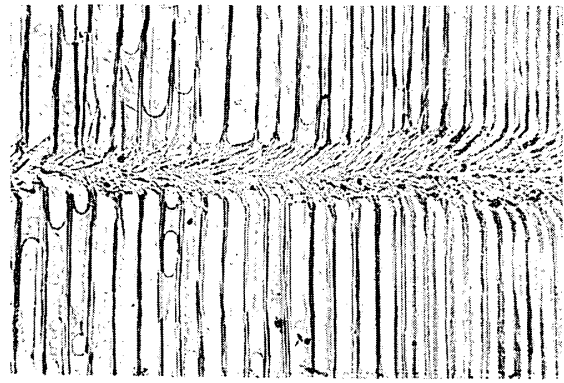


Photo 2. A part of a glue line, showing glue penetration only into early wood (left half) and so-called starved joint in late wood (right half). SUGI, (*r*), Glue-joint strength 46.5kg/cm^2 , Glue spread 700g/m^2 , Pressure 5kg/cm^2 , $\times 80$

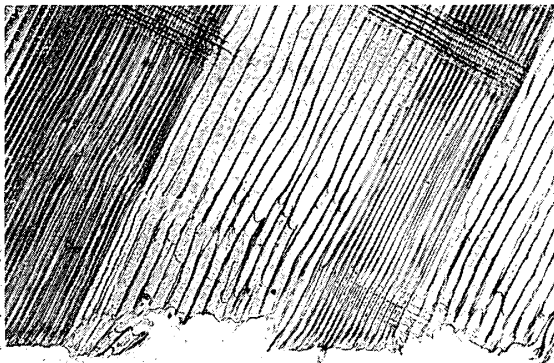


Photo 3. Glue penetrates into early wood and ray parenchyma cells (lower right). KUROMATSU, (*r*), $\times 35$

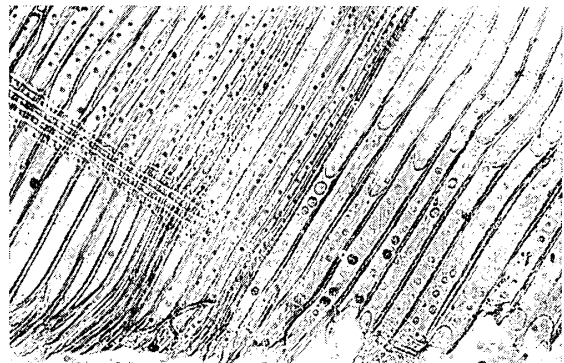


Photo 4. Glue penetrates into early wood tracheids, but oppositely directed menisci appear in glue line making starved joints (lower right). HINOKI, (*r*), $\times 85$

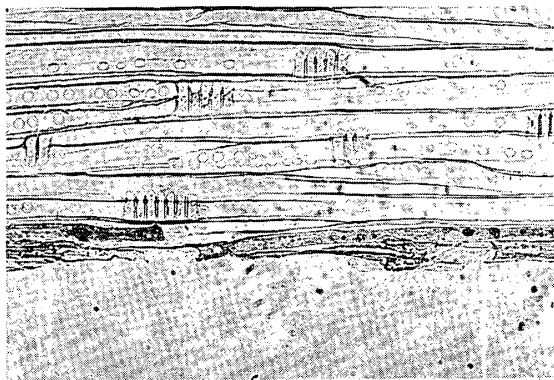


Photo 5. Apparent transverse penetration of glue caused by longitudinal one from cell openings in the glue line. SUGI, (*r-t*), $\times 70$

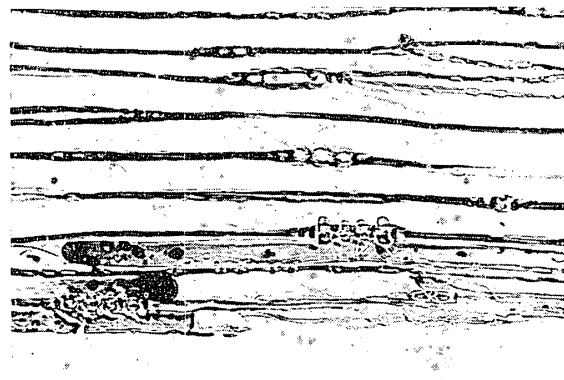


Photo 6. True transverse penetration of glue passing through windowlike pit-pairs of rays. KUROMATSU, (*t*), $\times 100$

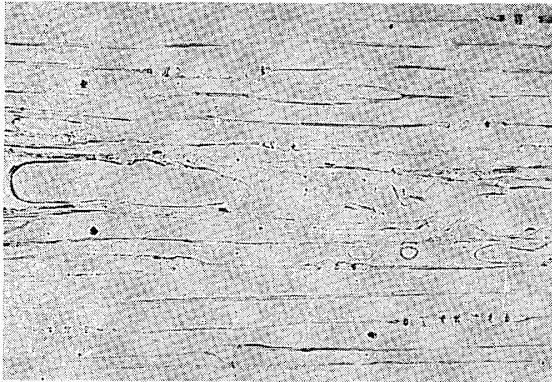


Photo 7. Radially glued line including air bubbles. AKAMATSU, (t), Glue-joint str. 62.7kg/cm², Gl. sp. 110g/m², Unpressed, ×80

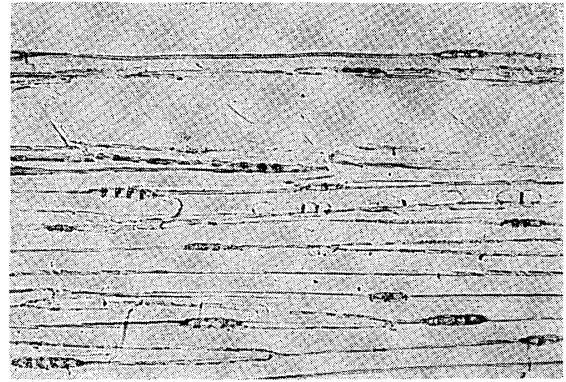


Photo 8. Radially glued line having scarce wood failure, i.e. 1~2 cell layers of tracheids, on its surface but no air bubbles. SUGI, (t), Glue-joint str. 78.5kg/cm², Gl. sp. 500g/m², Press. 5kg/cm², ×85



Photo 9. Casein glue penetrates into vessels. BUNA, (t), ×25



Photo 10. Urea resin penetrates into vessels. BUNA, (t), ×55

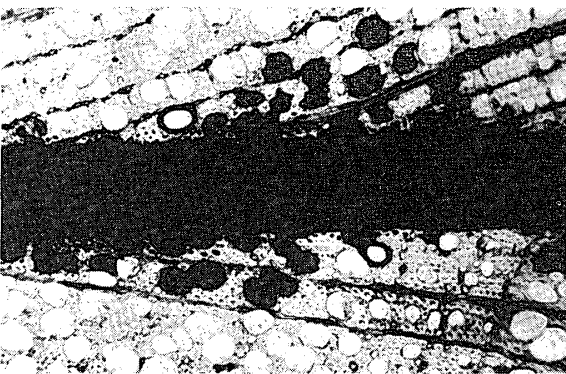


Photo 11. Resorcinol resin penetrates into vessels, wood fibers, and ray cells. BUNA, (x), ×55

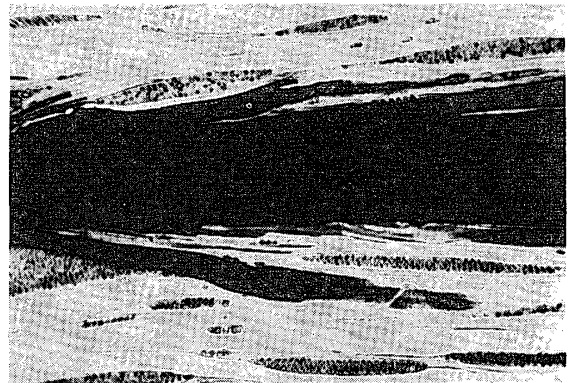


Photo 12. Resorcinol resin penetrates deeply into vessels through perforation plates (lower right). BUNA, (t), ×55

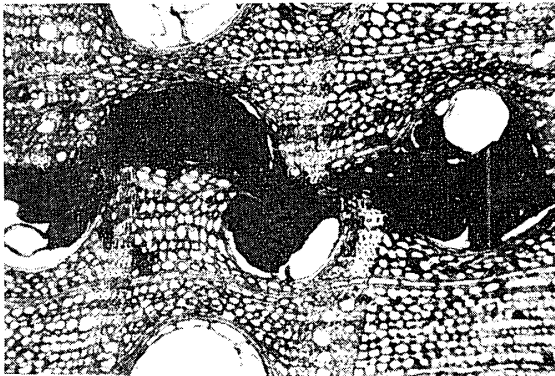


Photo 13. Resorcinol resin penetrates into vessels and wood fibers, but it is frequently obstructed by tyloses. MIZUNARA, (x), $\times 55$

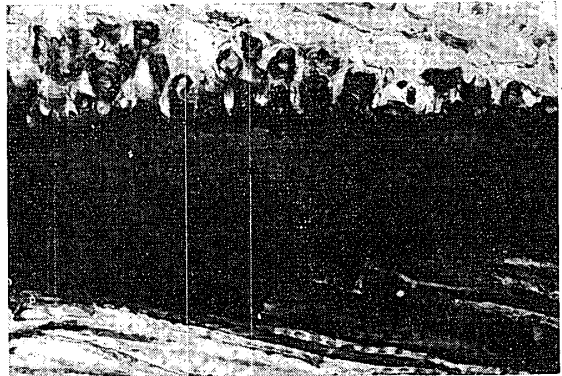


Photo 14. Resorcinol resin penetrates into ray cells (upper half) and wood fibers (lower half). MIZUNARA, (t), $\times 210$



Photo 15. Resorcinol resin penetration is obstructed by tyloses in a vessel. MIZUNARA, (t), $\times 50$



Photo 16. The same test piece as Photo 8, showing mutually opposite surfaces of a broken glue film with wood failure. SUGI, (r), Glue-joint str. 78.5kg/cm^2 , Gl. sp. 500g/m^2 , Unpressed, $\times 2$

的な欠陥が少なくなるためである (Photo 8)。

なおクロマツに面白い知見を得た。仮道管に縦浸透した接着剤が隣接放射組織との分野膜孔を通つて次の仮道管に横浸透している事実である (Photo 6)。クロマツの分野膜孔がいわゆる窓状で、スギ、ヒノキに較べて格別に大きい (Photo 1 と 4 を比較) ために圧力のかかった接着剤がこのような現象を起したものと考えられる。この場合窓状膜孔の膜孔膜は当然破壊されていると思われるが、この点は本観察ではつまびらかにし得なかつた。

次に広葉樹材における接着剤の浸透状態を参考までに観察した。広葉樹材を構成する細胞要素としては、道管、仮道管、木部繊維、木部柔細胞、放射組織細胞などがあげられるが、各要素の大きさや配列に差異があり、顕微鏡的構造は針葉樹材のそれとは比較にならないほど複雑である。プレイナーで削つたブナおよびミズナラの柃目面をカゼイン・尿素樹脂・フェノール樹脂・レゾルシノール樹脂・酢ビ樹脂接着剤などで接着し、切片をとつて接着剤の浸透状態を観察した (Photo 9~15)。接着剤が多量に浸透するのは被着面に開口している道管で穿孔板をも通過することがある (Photo 12)。もちろん他の要素すなわち木部繊維や放射組織細胞などに対

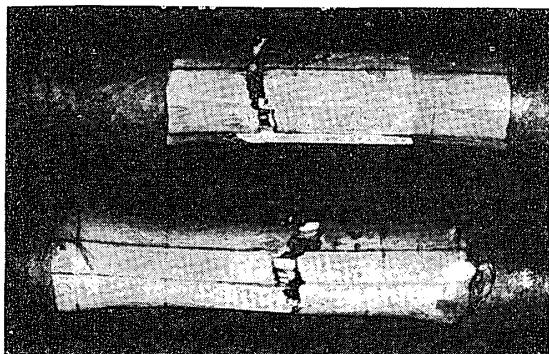


Photo 17. Failures of rotary bending test pieces. In outer surrounding parts of the pieces they are rather flat on account of the compression stress, but in axial parts they are indented by means of the tensile stress. HINOKI, $\times 1$

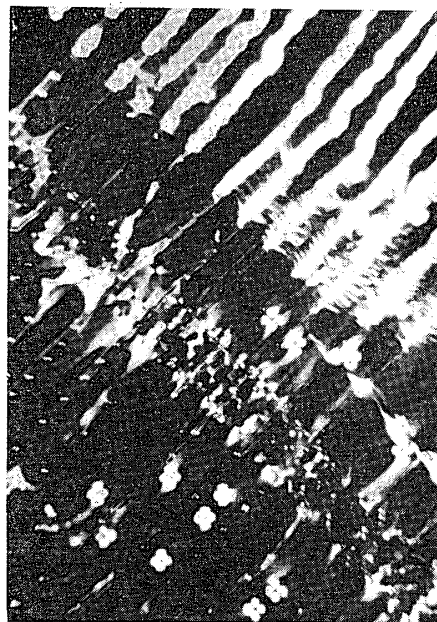


Photo 18. Slip lines (lower left) and a portion of a compression failure (upper right) in a compression test piece in polarized light. There is no relation between slip lines and bordered pits of tracheids. HINOKI, (*r*), $\times 160$

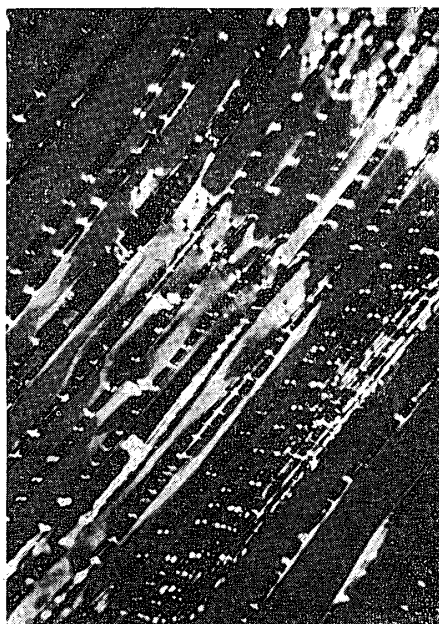


Photo 19. Occurrence of slip lines has little connection with that of compression failures. In this photo of a compression test piece, taken in polarized light, slip lines are clearly and regularly oriented in tangential cell walls of tracheids, but no compression failures are found. HINOKI, (*r*), $\times 160$



Photo 20. In outer surrounding part of a test piece of rotary bending, the compression and tensile stress are alternately repeated, and accordingly many slip lines take place and reach from radial to tangential cell wall and to adjacent cells continuously. HINOKI, (*r*), $\times 160$

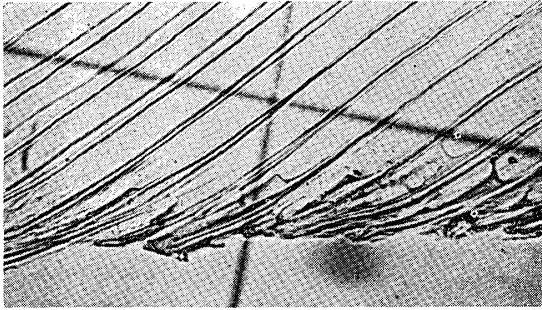


Photo 21. Urea resin glue penetrates along the cell lumen cavities oriented at 30° to the glue line in the scarf-joint. HINOKI, (r), $\times 160$

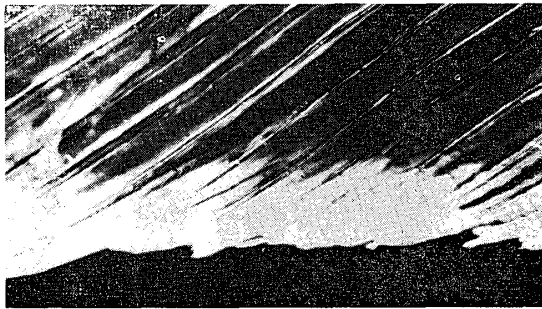


Photo 22. Same portion as Photo 21 in polarized light. Cell walls adjacent to the glue line are perfectly compressed by cutting saw and slip lines appear. HINOKI, (r), $\times 160$



Photo 24. Spiral cracks of compression wood. They appear at ca. 45° to tracheid axes, but no slip line can be found. AKAMATSU, (r), $\times 310$

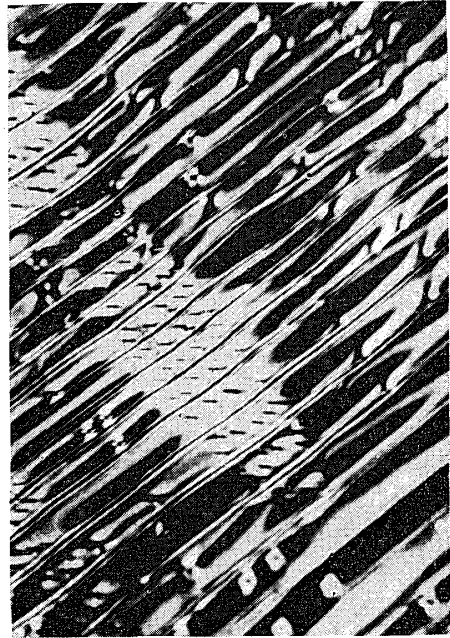


Photo 23. In this normal sound piece, there are no slip lines at all, but it is rather unusual, since the slip lines can always arise easily as the results of growth stress, wind stress, or wood-working processes. HINOKI, (r), $\times 160$



Photo 25. Spiral cracks of compression wood. They appear only in the secondary walls, taking shape of pleats (stained by safranin). They are quite different from slip lines which occur over full thicknesses of the cell walls. AKAMATSU, (x), $\times 1700$

しても、それが被着面に開口しているかぎり、接着剤はその内腔に縦浸透するが、その量は僅かである。ブナは散孔材であるが、内径のやや大きい早材道管の方が浸透が大きかった。ミズナラでは孔圏に属する早材道管の直径がブナより大きいにもかかわらず、チロースが存在するために浸透深さはそれほど大きくなかった (Photo 13, 15)。一般には浸透量は木材の孔隙量に比例するが、たとえ孔隙量が同じでも解剖的性質に影響されることを知る。従つて各樹種木材の浸透性を知ることによつて塗布量の適正値が得られるならば、極めて経済的な接着を行なうことができる。

Ⅳ 木 破 率 に つ い て

一般に接着力の大きいものほど木破率の大きくなる傾向はこの一連の実験においても認められたが、木部破断の起るのは殆ど早材においてであり、しかもそれが僅か1～2細胞層に限られていることが多い (Photo 8)。したがつて木破率の測定に際しては、このような個所を木破部分として加算するか否かによつて肉眼的木破率評価の個人誤差以上の差を生ずることは明らかである。例えば Photo 16 は Photo 8 に撮影した切片をとる前の剪断試験片の破断面であるが、この面の木破率は測定者によつて40～80%のひらきが生じた。この実験における僅かの事例から直ちに決定的な帰結を行なうことは尚早であるが、木破率をもつて接着力を推察する場合、接着層を僅か1～2細胞層が被覆している状態にある微視的な木破部分の面積をも加算したものを木破率とする方がむしろ適当なように思われる。従つて木破率の測定には10倍程度のルーペの適用が望ましい。こうすることによつて少なくとも木破率測定の個人誤差を著しく減少せしめることができよう。

Ⅴ 微視的破壊形態と接着層

集成材に限らず木材接着における被着面には往々にして鋸断したままのものが使用される。ことにスカーフ・ジョイントや木口面接着の場合、被着面の微視的構造が接着性能に大きく影響することは以上述べたとおりである。しかし接着力あるいは接着された材の強度には、これら被着面の構造のみならず、failure zone (or band) のような既成の破壊があればもちろん、たとえ slip line (or plane) 程度のものでも、minute copessimon failure (LÜDER's line⁶⁾) に発展したもので、当然影響するはずである。

このような見解に立つて今まですでに各種の実験に供した集成材の破壊部を、接着層との関連において、主に偏光顕微鏡によつて詳細鏡査した。

実験材料と方法

1. ヒノキ辺材の圧縮試験

圧縮破壊 (compression failure) の標準的な形態を把握するため、高野山産ヒノキ辺材から1×1×2(cm)の繊維方向に長い二方証試片をとり、圧縮破壊を行ない、常法で厚さ20μの柾目および板目切片をとつて偏光顕微鏡で観察した。

2. ヒノキ集成材の回転曲げ疲労試験

当所木材物理部門ですでに実験を終つた試片 (Photo 17) について、その中央破断部およびそれに隣接した部分から、長さ2 cm のブロックをとり、それぞれの中軸部と外周部とから

柾目・板目切片をとつて観察した。

3. スカーフ・ジョイントの実験試片

ヒノキ、スギ、クロマツの3樹種について上記実験のために作成したプレパラートの接着層部分の微視的な破壊形態を偏光顕微鏡によつて観察した。

4. 他のプレパラートによる比較観察

1および2の実験に用いたヒノキ正常辺材から柾目および板目のプレパラートを作つて鏡査比較したほか、既存のヒノキおよびアカマツのあて材プレパラートとの比較観察を行なつた。

結果と考察

1. 圧縮試験片

圧縮により挫屈した部分いわゆる **failure zone** では、細胞膜は完全に損傷を受け、直交ニコルの下で輝いて見える (Photo 18, 右上部)。さらに附近には肉眼では認めにくい **minute compression failure** が、偏光観察によつてはつきり認められるほか、仮道管の接線膜には **slip line** が多数発生しているのを見る (Photo 18, 左下部)。**compression failure** の認められない部分においても **slip line** は明瞭に見られる。しかもこれはかなり規則正しい間隔をもち、接線膜とくに晩材のそれに密度が高い (Photo. 19)。

slip line は極めて僅かの荷重で生ずることがすでに認められており⁶⁾、また **slip line** が通例接線膜から放射膜さらに接線膜へと連続し、隣接細胞の接線膜にも及んでいることからすれば、荷重が加わつた場合、細胞膜のフィブリル配列に歪みが生じて起つた **slip line** が次第に発達して、そのどこかで迂りを起して挫屈し、**minute compression failure** となり、さらに **compression failure** にまで発展するものであることが推察される。

他面、切片を精査すると **compression failure** が発生しているにもかかわらず、附近に **slip line** の全く認められない場合もあつた。これは負荷による応力が特に弱い部分に集中した場合、**failure zone** を現わしても、それが応力緩和の場所となつて、かえつて **slip line** が発生しなかつたものかと考えられる。

なお、パルプにおいて、仮道管が放射組織と接する部分は弱いという報告があり⁷⁾、また有縁膜孔の位置に **slip line** が多くあらわれる傾向があるという報告⁸⁾ もあるが、この観察では、放射組織あるいは有縁膜孔がとくに **slip line** あるいは **compression failure** の成因になるとは考えられず、有縁膜孔が多くてフィブリル配列の乱れている放射膜にかえつて **slip line** は少なくかつ不明瞭であつた。

2. 回転曲げ疲労試験片

試験片の中央破断部の巨視的な状態は、中軸部では鋸歯状、外周部では比較的平滑である。回転曲げの性質から外周部の応力は圧縮、引張りともに大きく中軸に近いほど小さい。しかも木材の圧縮強さは引張り強さの $1/2 \sim 1/3$ であるから、試片は外周部から圧縮破壊したものと考えられる。

破断部では、外周部分から得た切片にはもちろん、中軸部分から得た切片にも極めて多くの **slip line** があり (Photo 20)、その発生状態は早材と晩材、あるいは接線膜と放射膜に差異なく、ときには **minute compression failure** さえ認められた。しかし破断部から離れるに従つて **slip line** の密度は小さくなり、圧縮試験片からの観察結果と同様に、**slip line** は早

材より晩材に、放射膜より接線膜に、一層明瞭に認められた。これは晩材仮道管が厚膜で、剛性の六部分を受けもっており、また接線膜において放射膜よりフィブリルの配列が通直であるためと解せられる。これについては接線方向と放射方向とでポアソン比、引張・剪断強さが異なることから、接線膜にまず **slip line** が現われることが首肯されるという報告もある⁹⁾。

なお接着層に属する木部にとくに接着のために **slip line** などの発生した形跡は全く認められなかった。

3. スカーフ・ジョイント試片

木理に 30° の接着層の光学顕微鏡像 (Photo 21) は偏光顕微鏡下では Photo 22 のごとく、接着層所屬の細胞膜端が鋸断の際に破壊されていて輝いて見える。これは各試片についてその鋸断面に見られる現象で、木口面接着ことに晩材において著しい。このような部分では材の強さが極端に低下していることは推察に難くない。従つてこの程度にすでに細胞膜が損傷を受けているとすれば接着層に対する界面接着効果は減殺される。接着剤がある程度の深さにまで材中に浸透硬化し、その強度が木材より強いときにはじめて木材接着の意義が認められる。すなわちスカーフ・ジョイントあるいは木口接着に際しては、被着面の粗さ、凹凸のごとき構造変化のみでなく、その破損の状態についてもまた充分な注意を払わなければならないことを知る。

4. 他の試料との比較

正常健全なヒノキのプレパラートで **slip line** の存在を調査したところ、板目切片には **slip line** は殆ど認められず、柃目切片にも早材仮道管には殆ど存在しなかった (Photo 23) が、晩材仮道管にはしばしばそれを認めた。多くの既成プレパラートを観察したが、切片の全面にわたつて **slip line** の存在しないものはまず皆無といつてよい。中には **minute compression failure** の認められるものさえあつた。

風害木では肉眼でも判別できるほどの **compression failure** が認められており⁸⁾⁹⁾、正常健全と見なされる材にも眼に見えない **minute compression failure** ないしは **slip line** が多数存在している。これらが強度の減少を来たし破壊の原因になることは充分考えられる。

なおアカマツのあて材を含むプレパラートの観察によれば、あて特有の **spiral crack** の見られる部分には **slip line** は全く見られず、同じ切片でも **spiral crack** のない部分には **slip line** が認められた。**spiral crack** は細胞の長軸にほぼ 45° の角度でらせん状に現われ (Photo 24)、しかもアカマツあて材の木口面写真 (Photo 25) に見られるように、二次膜にのみそれが認められることは、電子顕微鏡によつても立証されている¹⁰⁾。これに反し **slip line** は細胞膜の縦断面では角度を持つて現われるが、内腔壁では細胞軸にほぼ直角に現われ、しかもこれは細胞膜の厚さの全部に亘っていることからすれば、前者 **spiral crack** とは全く別のものである。

要 結

集成材内部接着層の接着状態を顕微鏡的に観察した。まず集成材内部の接着層ことにスカーフ・ジョイントにおける接着状態を明らかにする目的をもつて、スギ、ヒノキ、クロマツの辺材試片中に、繊維方向に 0°, 30°, 60°, 90° に交わる接着層を作り、圧縮力と塗布量とを一定にした条件下で接着し、接着層剝離の難易との関連において、接着状態の差異を顕微鏡的に観

察した。またスギ、アカマツの木口・柾目・板目面を接着層とした場合に、塗布量や圧縮力の差が剪断試験による接着強さに及ぼす影響を、その接着状態の観察結果から判断した。これらの結果を通じて次のことがいえる。

接着剤は接着面に開口している細胞に浸透する。繊維方向と接着層とのなす角度が 0° （柾目あるいは板目面など）の場合には被着面は明らかに平滑であるが、角度の増加に従つて粗くなり、かつ接着面における細胞の開口数も増加するから、接着剤は内部に浸透し易く、接着面における接着剤の拡がりは少なくなり、接着層中に気泡を含んだり、欠膠が起つて接着力を低下せしめたりする。的確な接着の要求される集成材においては、ここにいう微視的欠膠を塗布量と圧縮の加減によつて極力避けなければならない。スカーフ・ジョイントに欠膠を生ぜしめないためには、柾目あるいは板目面接着の場合の2～3倍の塗布量を必要とする。

なお接着に際しては被着面の構造のみならず、既存の破壊もその接着性能に当然影響すると考えられる。そこで各種実験に供した集成材の破壊状態を、接着層との関連において、おもに偏光顕微鏡によつて観察した。柾目・板目面接着では、接着のためにとくに *slip line* が発生したという形跡はない。しかしスカーフ・ジョイントの個所や木口面接着層では被着面の細胞膜の破損が認められ、これが接着性能に影響することが考えられる。接着操作上十分に考慮しなければならない点である。

いずれにしても、木材の接着に際しては被着面の顕微鏡的構造の差異を吟味する必要がある。平滑なほど塗布量少なく低圧縮力で十分な接着が可能であるが、材面が少々粗くても塗布量や圧縮力その他接着条件が適当なときには好結果が得られる。また如上の諸現象からみて、接着機構において比接着に較べ機械的接着をとかく軽視するのは問題であるといえよう。

Summary

Especially important properties of glued-laminated wood are its strength and endurance, and jointing state of its internal glue-films is a key point to them.

Now, using scarf-jointed softwood pieces (Table 1), a precise observation of the jointing state urea resin glue-films having different angles to the wood grain (Fig. 1) was carried out, at first, in relation to their delamination times in boiling water, proportion of glue spreading area, and penetrating depths of glue into wood. Fig. 2 shows the interrelation of some factors above mentioned.

The results are as follows: Glue penetrates into openings of wood cells. In the case of pieces in which the angle between glue-film and fiber direction is 0° , its sawn and glued surfaces are apparently flat even under microscope. But in accordance with the increase of angles, their flatness decreases, the number of their cell openings increases, glue penetrates more and more easily, spread over the joint surfaces grows more narrowly, and the time necessary for delamination of the glue-films becomes shorter.

Secondly, the jointing state of glue-films is revealed by the microscopic observations. The test pieces are made by using also an urea resin adhesive which is

adopted to the glue-films situated in all directions of two species of coniferous woods (Table 2). The observation of the glue-films is applicable to the interpretation of the relation between variation of glue-spreads and pressures and resultant shearing strengths of the glue joints (Figs. 3 and 4).

Noticeable points of the results are as follows: (1) To get a precise jointing by adhesion, especially such a one as that of the glued-laminated woods, micro-starved joints involving minute air-bubbles in the glue-films or so-called dry-adhesions caused by the lack of glue by its penetrating into wood, should be carefully avoided by proper adoptions of spread-rates and pressures. (2) To avoid occurrence of starved joints, 2 or 3 times glue volumes are necessary for making scarf-jointings compared with edge- or flat-sawn grained jointings. And, microscopically strict examinations of the sawn surfaces and glued states over the glue-films are, indeed, most essential in the laminated wood making. (3) In estimating glue-joint strengths, it is desirable to take into consideration minute wood failures of adhesion, which consist of only a few layers of cells covering the glue-films, and thus the individual error in measuring the wood failure proportions would possibly be minimized, although supplementary evidence in regard to it must be pursued in future.

In many cases of wood gluing, not only of the glued-laminated woods but also of others, like the wood surfaces of the jointings, usually the sawn ones are used as they are. Especially in the cases of scarf- or end-joints, it is evident that micro-failures or -structures of their glued surfaces have influence upon the bonding efficiency.

Subsequently, the failures of some specimens of the glued-laminated woods used for strength tests are observed by the polarization microscope. The results obtained are: (1) Slip lines are always found in normal sound woods but only a few. (2) Distribution of the slip lines is generally uniform, but they take place more frequently in the failure zones. Therefore the slip lines seem to be a sign of failures. (3) The slip lines are generally apparent on tangential walls of tracheids than radial ones of them because of the fibrillar orientation of their secondary walls. (4) And the slip lines occur more frequently in latewood than earlywood, because the latewood tracheids are thicker walled and take charge of almost rigidity of wood.

Again the results of observation on sawn and glued surfaces of the glued-laminated wood are as follows: (1) On the glued surfaces belonging to the quarter- or flat-sawn grain, there are no slip lines or failures caused by the adhesion processes. (2) In the cases of scarf- or end-surface joints, cell walls in their glue line regions are almost wholly bended at their ends by saw-cutting. And this defor-

mation of the cell walls necessarily damages the bonding strengths of the joints, so that we have to be careful in carrying out the adhesion procedure.

Furthermore, so-called spiral cracks of the compression wood occur only in the secondary walls of tracheids, but the slip lines are caused in full thicknesses of the cell walls by some stresses.

文 献

- 1) MARIAN, J. E., D. A. STUMBO and C. W. MAXEY : For. Prod. Jour. 8 : 345 (1958)
- 2) 堀岡邦典：林試研報 No. 89 : 124 (1956)
- 3) 貴島恒夫・林昭三：木材研究 No. 24 : 33 (1960)
- 4) 堀岡邦典・堀池清・野口美保子：林試研報 No. 89 : 7~8 (1956)
- 5) 沢田稔：林試研報 No. 108 : 115 (1958)
- 6) 北原覚一・蕪木自輔・村木正男：東大演習林報告 No. 47 : 1 (1954)
- 7) FORGACS, O. L. : Tappi 44 : 112 (1961)
- 8) 宮島寛：北大演習林研究報告 20 : 197 (1959)
- 9) 井坂三郎：林試研報 No. 111 : 183 (1959)
- 10) WERGIN, W. und G. CASPERSON : Holzforschung 15 : 44 (1961)